



TITLE:

磁気構造、結晶場と中性子散乱実験(強相関伝導系の物理 若手夏の学校,講義ノート)

AUTHOR(S):

大山, 研司

CITATION:

大山, 研司. 磁気構造、結晶場と中性子散乱実験(強相関伝導系の物理 若手夏の学校,講義ノート). 物性研究 1996, 65(4): 496-505

ISSUE DATE:

1996-01-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/95646>

RIGHT:

磁気構造、結晶場と中性子散乱実験

東北大学 金属材料研究所

大山研司

1：中性子自身の性質

中性子の粒子として最も重要な性質は、電氣的に中性である事と、磁気モーメントを持つ事である。前者の性質から、中性子は、物質内の強力なクーロンポテンシャルの影響を受けず、原子核近傍で核力によって散乱される（核散乱）。核散乱振幅は核種で大きく異なるが、原子番号とは無関係である。この性質をうまく利用すれば、特に軽元素の構造決定等がX線に比べ精度良く行える。一方、磁気モーメントを持つために、物質中の磁性電子の磁気モーメントとの相互作用によっても中性子は散乱される（磁気散乱）。磁気散乱を測定する事で、物質中の磁気的情報が得られる。

次に、中性子の波としての重要な性質として、そのエネルギーと波長の関係がある。X線の場合、ラウエ写真等に用いられるX線のエネルギーは 10^4 K程度で、物質中の運動等を測定するには大きすぎる。一方、赤外、遠赤外光のエネルギーは室温程度であり、原子の運動状態等の測定に適しているが、その波長は $10^4 \sim 10^6 \text{ \AA}$ で、ミクロ構造を調べるのには適さない。これに対し、中性子の場合、例えば通常の散乱実験に多く用いられる波長 2.42 \AA の中性子のエネルギーは温度にして約160Kである。従って、中性子は、電磁波と比べ、物質のミクロ構造と動的ふるまいを同時にかつ精度良く測定するのに適したエネルギーと波長の領域を持っているといえる。

2：中性子でなにができるか。

中性子実験は、大きく分けて、試料での散乱前後で中性子のエネルギー解析を行う非弾性散乱実験と、エネルギー解析を行わない弾性散乱実験とがあり、前者はエネルギー励起を伴う動的な構造解析、後者は結晶構造などの静的構造の解析に用いられる。表1に、中性子散乱を用いて行われている主な研究内容と、中性子のどのような性質を利用しているかを示す。この表から、中性子散乱実験が、広範囲の研究に役立っている事が理解できると思う[1]。

研究目的	散乱	内容	利用する中性子波の特徴
○静的構造解析 (第2章) (第6章)	弾性核散乱	プロトン位置の決定 (水素化合物、無機・有機含水素結晶、水素結合、 生物物質など) 近接原子番号元素の識別 (合金、スピネルなど) 重い元素を含む構造 (金属酸化物、窒化物など)	HまたはDの散乱振幅が比較的大きいこと 散乱振幅の差が比較的大きいこと 散乱振幅の差が小さいこと
—液体構造解析 (第13章)	弾性核散乱	動径分布関数の決定	散乱振幅の減衰が小さいこと、吸収係数が小さいこと
—磁気構造解析 (第10章)	弾性磁気散乱	スピン配列、モーメントの配向、モーメントの大きさ (反強磁性体、フェリ磁性体、強磁性体) 電子分布状態の研究 (強磁性体その他)	磁気散乱現象 偏極中性子の利用
○動的構造解析 (第2章) (第7章)	非弾性核散乱	格子振動分散関係 force constant の決定など	中性子とフォノンのエネルギー交換など
—結晶相転移、液体状態などの研究 (第9～13章)	非弾性核散乱	分極揺動、拡散など時間因子を伴う分布関数、臨界状態の研究	中性子と運動する粒子のエネルギー交換
—原子、分子振動 (第11章)	非弾性非干渉性散乱、吸収スペクトル	低振動数原子振動の研究、エネルギー・スペクトルの研究 (Hの熱振動など)	冷中性子のエネルギー領域 (赤外、遠赤外線との類似)
—スピン波の研究 (第12章)	非弾性磁気散乱	スピン波の研究、臨界散乱 (磁性体の電子状態、転移機構など)	中性子とマグノンのエネルギー交換など

表1 中性子散乱によって行われる研究内容[1]

3: 測定原理

ここでは、磁性研究に最も重要な中性子磁気非弾性散乱断面積について説明する。中性子散乱断面積は、時空間をフーリエ変換した逆空間で記述するのが便利なので、以下では逆空間の位置ベクトル（波数ベクトル） \vec{Q} および振動数 ω を用いて散乱断面積を表す。実際の実験では、この \vec{Q} と ω は、散乱前後での中性子の運動量変化（散乱ベクトル）とエネルギー変化に対応する。

中性子磁気非弾性散乱の測定原理としての重要性は、測定量（散乱強度）が、磁性研究の最も基本的な物理量である一般的な動的帯磁率と直接的な関係にあるという事である。中性子磁気非弾性散乱断面積は定数項を除いて次の様に表される。

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} \propto [f(\vec{Q})]^2 \frac{k_f}{k_i} \sum_{\alpha\beta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{Q}_\alpha \cdot \hat{Q}_\beta) S_{\alpha\beta}(\vec{Q}, \omega) \quad (1)$$

(1) 式左辺は、中性子散乱の立体角 Ω 、エネルギー ω 当たりの散乱断面積で、実際に検出される中性子カウント数に比例する。右辺の $f(\vec{Q})$ は磁気形状因子で、磁性電子の空間分布のフーリエ変換を表す。 $S_{\alpha\beta}(\vec{Q}, \omega)$ は、 m 番目の位置での時刻0のスピンの $\vec{S}_m(t=0)$ の α 成分と、 n 番目の位置の時刻 t でのスピンの $\vec{S}_n(t)$ の β 成分との相関の熱平均を表すスピン-スピン相関関数 $\langle S_m^\alpha(t=0) S_n^\beta(t) \rangle$ の時間と空間に関するフーリエ変換で、次の(2)式で表される。

$$S_{\alpha\beta}(\vec{Q}, \omega) = \frac{1}{2\pi} \int d\vec{r} \int dt \langle S_m^\alpha(t=0) S_n^\beta(t) \rangle e^{i(\vec{Q}\vec{r} - \omega t)} \quad (2)$$

実はこの $S_{\alpha\beta}(\vec{Q}, \omega)$ は、温度因子を除けば一般的な動的帯磁率 $\chi(\vec{Q}, \omega)$ の虚数部分に比例している。

動的帯磁率の虚部と実部はKramers-Kronigの関係で結ばれているので、中性子磁気非弾性散乱を測定する事は、動的帯磁率を直接測定する事にほかならない。一方、帯磁率測定等、磁性研究に用いられる実験手法の多くは、動的帯磁率の \vec{Q} あるいは ω に関する積分値を測定しているのであり、情報として十分でない場合がある。従って、中性子散乱実験で得られる情報は、他の手法に比べ曖昧さの少ない直接的な情報であるといえる。

4: 中性子線源および装置

物性実験に用いられる中性子源には、原子炉と加速器利用の二種類がある。前者は核分裂によって発生する中性子を利用する。後者は、加速器によって加速された陽子等をW,U等のターゲットに衝突させ、スパレーション過程により中性子を発生させる。ただし、両線源とも、発生する中性子のエネルギーが極端に大きいので、水、固体メタン等の減速材に入射させ、減速材の温度程度のエネルギーまで減速してから物性実験に用いる。日本では、茨城県東海村の日本原子力研究所の改3号炉(JRR-3M)と、つくば市の高エネルギー物理学研究所のスパレーション中性子源(KENS)がそれぞれ中心的役割を果たしている。両線源の主な相違点は、発生する中性子強度の時間依存性である。原子炉では中性子線強度は時間に対し一定なのに対し、加速器の場合、幅が数〜数10 μ secのパルス状に、かつ繰り返し中性子が発生する。このため、後者はパルス源とも呼ばれる。

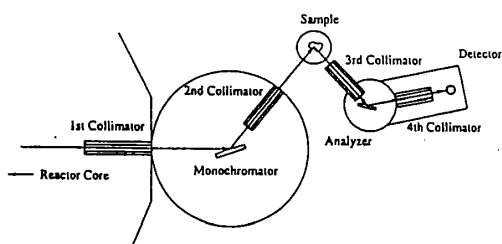


図1 三軸型分光器

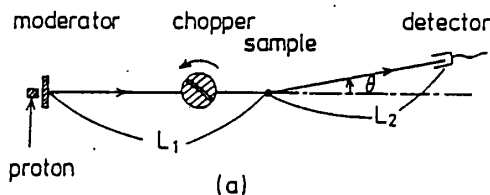


図2 チョッパー型中性子分光器

図1、2に、両線源での典型的な中性子分光器の模式図を示す。図1は原子炉に設置される三軸型分光器、図2はパルス源に設置されるチョッパー型分光器である。三軸型分光器では、減速材からでてきた様々なエネルギーの中性子から、Ge等の単結晶（モノクロメーター）のブラッグ反射によって単色中性子のみ選び出し、試料に入射させる。試料での散乱後、別の単結晶（アナライザー）によって散乱後のエネルギー解析を行う事で、試料中での励起エネルギーと運動量変化を測定する。実際のスキャンはX線回折同様、各部の散乱角を変化させておこなう。一方、チョッパー型の場合は、中性子遮蔽スリットの高速回転体（約36000rpm）であるチョッパーによって中性子を単色化し、試料に入射させ、散乱された中性子を固定された検出器で検出する。この測定法は、中性子が発生してから検出されるまでの時間を測定する事で中性子のエネルギー解析を行う事から、「飛行時間法」あるいは「TOF(Time-of-Flight)法」と呼ばれている。KENSでの通常の実験では、測定に用いる中性子の飛行時間は数～数10msecである。

原子炉、パルス源の分光器の基本的な違いは、測定可能な Q - ω 空間である。三軸型分光器は Q - ω 空間で任意のスキャンが可能であるが、測定できる範囲は狭い。一方、パルス源での分光器は、スキャンの自由度は制限されているが、一度に測定できる Q - ω 範囲は非常に広い。そこで、実際の実験では、線源の強度特性も考慮し、低エネルギースピンの励起等、 Q - ω 空間での細かい情報が必要な場合は三軸型を、結晶場分裂など Q - ω 空間で広がっている励起や、高エネルギー励起の場合はパルス線源の分光器を、と目的によって使い分ける。

5：磁気構造解析

ここでは、中性子散乱実験の重要な役割の一つである磁気構造解析について説明する。 Q 空間での細かい測定が必要なので、原子炉の中性子回折装置を用いる事が多い。

今、1種類の磁性原子からなる結晶を考え、一つの波数ベクトル \vec{K} で書き表せる様な単純な磁気モーメント配列を考えると、 m 番目の原子位置 \vec{R}_m での磁気モーメント \vec{S}_m は次のように書ける。

$$\vec{S}_m = \vec{S}_0 \exp(i\vec{K}\vec{R}_m) \quad (3)$$

強磁性体であれば $\vec{K} = 0$ 、結晶軸 \vec{a} の方向に2倍周期で進む単純な反強磁性体の場合は $\vec{K} = 0.5\vec{a}^*$ となる。ここで \vec{a}^* は逆空間での基本ベクトルで、結晶の基本ベクトル \vec{a} に対し、立方、正方、斜方晶の場合は $\vec{a}^* \parallel \vec{a}$ かつ $|\vec{a}^*||\vec{a}| = 2\pi$ の関係がある。複雑な長周期磁気構造でも（3）式のフーリエ合成によって表すことができる。今、すべての原子の磁気モーメントの大きさが一定値 S_0 である簡単な磁気構造を考えると、核および磁気ブラッグ散乱の断面積は、定数を除けば次のように書ける。

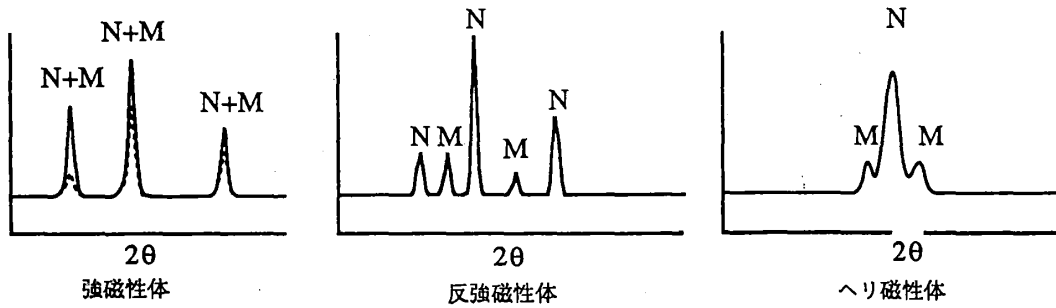


図3 磁気散乱パターンのモデル図

$$\left. \frac{d\sigma}{d\Omega} \right|_N \propto \sum_{\vec{\tau}} \delta(\vec{Q} - \vec{\tau}) \left| \sum_i b \exp(i\vec{\tau} \cdot \vec{r}_i) \right|^2 \quad (4)$$

$$\left. \frac{d\sigma}{d\Omega} \right|_M \propto \sum_{\vec{\tau}} \delta(\vec{Q} \pm \vec{K} - \vec{\tau}) f(\vec{Q})^2 \left| \sum_i S_0 \sin \alpha_i \exp(i\vec{Q} \cdot \vec{r}_i) \right|^2 \quad (5)$$

(4) 式が核散乱、(5) 式が磁気散乱を表し、(4) 式第2項、(5) 式第3項を構造因子等と呼ぶ。ここで \vec{Q} は中性子の散乱ベクトルで、散乱角 2θ 、波長 λ と $|\vec{Q}| = 4\pi \sin \theta / \lambda$ の関係がある。 \vec{r} は単位胞内での原子の位置、 $\vec{\tau}$ は逆格子点の位置で $\vec{\tau} = l\vec{a}^* + m\vec{b}^* + n\vec{c}^*$ 、 \vec{a}^* 等は逆格子の基本ベクトル、 (l, m, n) は整数でブラッグピークの指数に対応している。 α_i は磁気モーメントと \vec{Q} のなす角で、中性子散乱は \vec{Q} に垂直な磁気モーメント成分のみを観測している事になる。(5) 式は、実験で \vec{Q} を変化させてながら散乱強度を測定していくと、 $\vec{Q} = \vec{\tau}$ となった時に核散乱ブラッグピークが、 $\vec{Q} = \vec{\tau} \pm \vec{K}$ の時に磁気散乱ブラッグピークが現れる事を示している。ただし、消滅則によって構造因子が0になる位置では、ピークは現れない。強磁性 $\vec{K} = 0$ であれば、核散乱と磁気散乱は同じ位相因子をもち、核散乱と磁気散乱のピークが重なるが、 $\vec{K} \neq 0$ の反強磁性体などでは核散乱とは異なる位置に磁気散乱ピークが現れる。図3に、強磁性体、反強磁性体、ヘリ磁性体について散乱パターンの模式図を示した。

磁気構造決定に必要な情報は \vec{K} 、磁気モーメントの大きさ S_0 と \vec{K} に対する向きの3つである。まず \vec{K} は磁気散乱ピーク位置 $\vec{\tau} \pm \vec{K}$ から正確に決定できる。結晶構造と核散乱長 b はわかっているから、磁気散乱と核散乱強度を精密に測定すれば、(4) (5) 式から磁気モーメントの大きさと \vec{K} に対する向きを決める事ができるが、実際は、得られた \vec{K} から磁気構造を予想し (5) 式でのモデルフィッティングを用いて決定する事が多い。

さて、中性子散乱を用いて磁気構造を決定した例として、重い電子系U化合物 UPd_2Al_3 の磁気構造を説明する[2]。 UPd_2Al_3 は六方晶 PrNi_2Al_3 型結晶構造をもち、 $T_N = 14\text{K}$ で反強磁性的磁気秩序相に、 $T_C \sim 2\text{K}$ で超伝導相に転移する事が分かっている。図4はKrimmelらによる粉末試料 UPd_2Al_3 での中性子回折パターンである[3]。図4下図が実験データで、 T_N 上下の1.7Kと20Kのデータの差をとり、磁気散乱ブラッグピークのみを示している。図4中の磁気散乱ピーク位置を分析すると、全ての磁気散乱は $\vec{Q} = \vec{\tau} + (0, 0, 0.5)$ の位置に現れている。これは、 UPd_2Al_3 の1.7Kでの磁気構造が

$\vec{K} = (0, 0, 0.5) = 0.5\vec{c}^*$ の対称性をもつ反強磁性構造である事を意味する。すなわち、c面内でU磁気モーメントが強磁性結合し、c軸方向に反強磁性結合する単純な反強磁性構造である。核散乱強度と磁気散乱強度の比較から、Uの磁気モーメントは $0.85 \pm 0.03 \mu_B$ でC面内にある事が示された。この結果は、単結晶 UPd_2Al_3 による帯磁率測定の結果と良く一致している。図4 上図は、この磁気構造による磁気散乱パターンの計算結果である。ただし、図中の指数は磁気的ユニットセルでの指数で、例えば図中の $(0,0,1)$ は、結晶ユニットセルでの指数では $(0,0,0.5)$ に対応する。さらに、Kitaらによって単結晶 UPd_2Al_3 での詳細な中性子回折実験が行われていて、磁気モーメントがc面内でb軸方向を向いている事が示されている。

[4]。図5はKitaらによって測定された、無磁場下での複数の磁気散乱ピークの温度変化である。これから反強磁性相の磁気散乱が $T_N = 14.3K$ で消滅しているのがわかる。また、図5中の $(1,1,1/2)$ 、 $(1,1,3/2)$ 等で、11K以上で温度依存性の異常の存在が確認された。これは、 $11K < T < T_N$ で、別の incommensurate 構造の出現など、何らかの磁気構造の変化がある事を示唆しているが、詳細はまだ明らかではない。また、この図には示されていないが、超伝導状態の0.4K

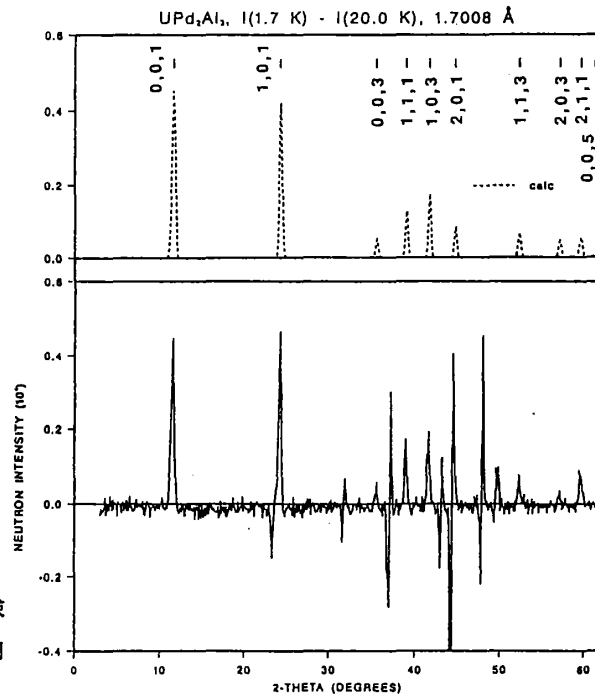


図4 粉末回折による磁気散乱パターン[3]

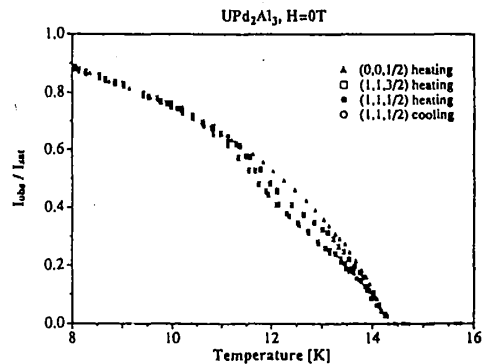


図5 磁気散乱強度の温度変化[4]

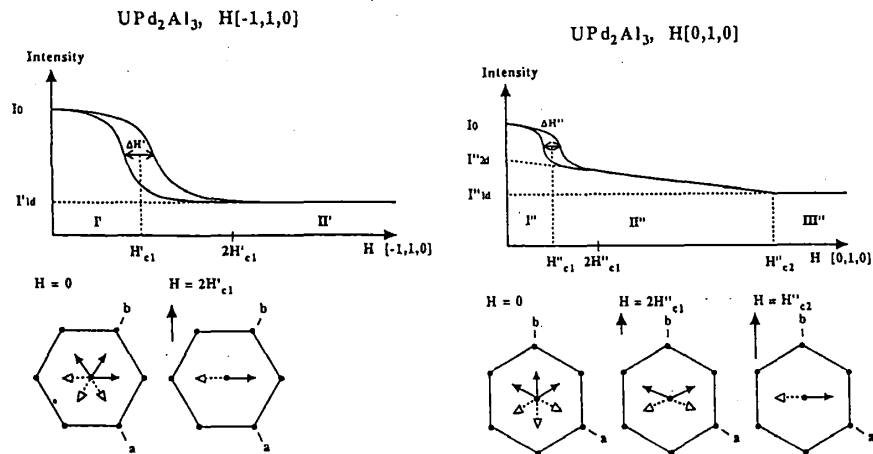


図6 磁気構造と磁気散乱の磁場変化の計算値[4]

でも磁気散乱が観測され、 T_c 近傍で散乱強度の異常は観測されなかったことから、 T_c 以下では超伝導状態と磁気秩序状態が共存している事が確認された。Kitaらは磁場中での磁気構造に関する詳しい実験も行っている。図6にKitaらによって報告された磁気構造のモデルを示す[4]。図の黒丸がUを、白黒矢印は、3つの磁気ドメインでの磁気モーメントを示す磁場はb軸 ($H//[0,1,0]$) と $H//[-1,1,0]$ の二つの方向にかけている。b軸に磁場をかけた場合は、3種類の磁気構造が出現し、中間領域では、磁場方向のドメインのみが消失している。一方、磁場を $[-1,1,0]$ 方向にかけた場合は、中間領域は存在しない。図6にはこの磁気構造で予想される磁気散乱強度の磁場依存性を示していて、実験との一致は非常に良い。この結果を磁気相図にまとめたのが図7である。

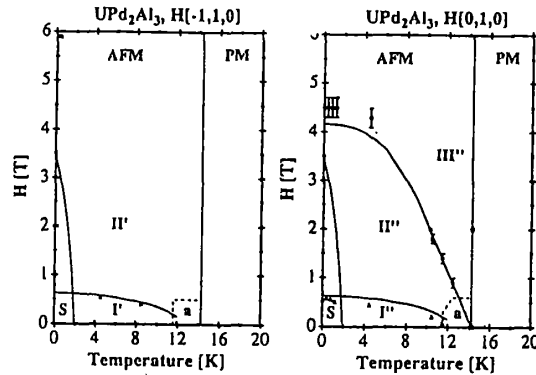


図7 磁気相図[4]

6: 結晶場分裂

中性子非弾性散乱を用いると、結晶場によって分裂した4f状態間の励起をピークとして直接観測できるので、中性子散乱は結晶場効果の研究に重要な役割を果たしている。結晶場分裂に起因する非弾性散乱断面積は次の様にかかる。

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} \propto \left| f(\vec{Q}) \right|^2 \frac{k_f}{k_i} \sum_{ij} \rho(T) \langle j | J_{\perp} | i \rangle^2 \times \delta(\omega_j - \omega_i - \omega) \quad (6)$$

ここで、 $\langle j | J_{\perp} | i \rangle$ は結晶場分裂した4f状態間の遷移行列要素、 ω_i は状態のエネルギー固有値、 $\rho(T)$ は始状態の温度Tでの占有率である。(6)式は、エネルギー ω を変化させながら中性子非弾性散乱スペクトルを観測した時、4f電子状態の分裂の大きさ $\omega_j - \omega_i$ のエネルギー位置に、遷移確率に比例した積分強度をもつ散乱ピークが現れる事を意味している。実際の実験では、ピークはデルタ関数的にはならず、ローレンツ型のピーク形状を示す事が多い。また(6)式は、 $|\vec{Q}|$ に対して単調に減少する $f(\vec{Q})$ 項を除けば \vec{Q} を含まないため、散乱は等方的 (非干渉性散乱) である。従って、細かなQ依存性の測定の必要がなく、かつ広いエネルギー範囲での測定が望ましいので、多結晶試料を用いたパルス源の分光器での測定が適している。

図8に実際の結晶場による非弾性散乱スペクトル例として、斜方晶 ϵ -TiNiSi型構造を持つギャップ型近藤物質CeNiSn[5]とNiをPd,Ptで置き換えた関連物質CePdSn,CePtSnの約20Kでの中性子非弾性散乱スペクトルを示す[6]。測定はKENSに設置されたチョッパー型分光器INCを用いて行われた。横軸に励起エネルギーをmeV(1meV=11.6K)で示している。ところで、結晶場分裂等の非弾性磁気散乱を中性子で観測する場合注意しなければならないのは、非弾性散乱スペクトルは磁気散乱のみでなく、フォノンによる散乱を含んでいる事である。従って、定量的な議論のためには、フォノン散乱をスペクトルから取り除く必要がある。それには、4f電子を含まないLa系参照物質 (LaPdSn等) を用いた推測等、いくつかの方法があるが、このデータの場合、磁気散乱とフォノン

散乱の強度のQ依存性が大きく異なる事を利用して磁気散乱のみを取り出している。図中に、フォノンを取り除く前の生データとフォノン成分を示している。

さて、斜方晶の対称性下では、 $\text{Ce}^{3+}(J=5/2)$ の6重縮退が結晶場により3つの二重項に分裂する。図8のCePdSnでの18,25meV付近、CePtSnでの23,35meV付近に見られる顕著な磁気散乱ピークは、基底二重項から二つの励起状態への遷移に対応し、ピーク位置が分裂の大きさを表す。分裂の大きさ等を正確に決めるには、次のようなローレンツ関数でスペクトルをフィッティングする。

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} \propto \frac{\hbar\omega}{1 - \exp(-\hbar\omega\beta)} \sum_{i=1}^2 \frac{\Gamma_i}{(\hbar\omega - \Delta\epsilon_i)^2 + \Gamma_i^2} \quad (7)$$

ここで、 $\hbar\omega$ はエネルギー変化、 $\Delta\epsilon_i$ は分裂の大きさ、 Γ_i はピーク幅である。また、 $\beta=1/k_B T$ である。ただし、(7)式では、磁気形状因子や、波数依存性等の項は省略している。図8中の実線は、(7)式に装置のエネルギー分解能を考慮したフィッティングの結果で、分裂の大きさ $\Delta\epsilon_i$ は、CePdSnで17.4,25.8meV、CePtSnでは23.6,36.6meVと求められた[6]。CePdSn,CePtSnともピーク幅 Γ_i は3meV程度で、比較的シャープなピークになっている。図9に得られたCePdSn,CePtSnでの分裂の様子を示した。矢印が観測された励起を表している。CePdSn,CePtSnで明瞭な結晶場のピークが

観測されたという事は、これらの化合物での4f電子状態の局在性が強い事の証拠である。一方、ギャップ型近藤物質CeNiSnのスペクトルはCePdSn,CePtSnとは大きく異なり、顕著な構造を示さず60meV付近まで単調に減少している。図8中の実線は、 $E=0$ を中心とするローレンチアンによるフィッティング結果である。このような中性子スペクトルの大きな差の原因は現在のところ明らかではないが、CeNiSnとCePdSnの帯磁率のふるまいの違いと関連づけられると思われる。CeNiSnでの帯磁率の温度依存性は小さく、a軸が容易軸、c軸が困難軸になっているのに対し[5]、CePdSnでは高温での帯磁率でCurie-Weiss則が良く成り立ち、b軸が容易軸、c軸が困難軸になっている事が報告されている[7]。これは、CeNiSnとCePdSnでは、4f電子状態の局在性、結晶場効果等に大きな違いが存在する事を示唆しているが、この中性子散乱スペクトルは、それを裏付けている。多くの価数揺動物質で、その強いスピン揺動に起因する $E=0$ を中心とするブロードな散乱が観測される事から、CePdSn等では局在的4f電子状態を持つものに対し、CeNiSnの4f電子状態は価数揺動的な性質を持っていると見ることもできるかもしれない。CeNiSnの低エネルギー領域には、ここでは触れなかった興味深い磁気励起が存在しており、この系の4f電子状態の動的性質の理解にはさらに詳しい研究が必

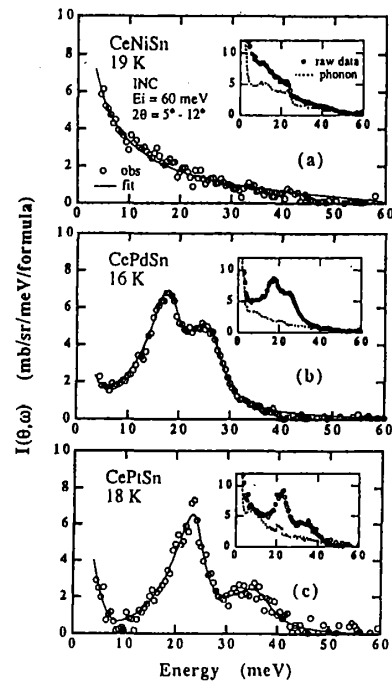


図8 CeTlSn(X=Ni,Pd,Pt)の磁気非弾性散乱スペクトル[6]

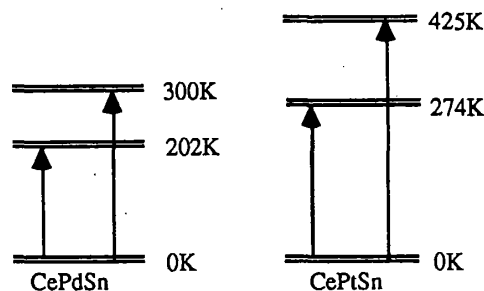


図9 CePdSn,CePtSnの結晶場分裂

7 重い電子系 CeCu_6 および CeRu_2Si_2 のスピン相関

中性子散乱実験が重要な役割を果たした例として、重い電子系化合物 CeCu_6 および CeRu_2Si_2 でのスピン相関を説明する。この二つの化合物は、結晶構造は異なるが、動的帯磁率のふるまいに興味深い類似性があり、特徴的エネルギーがファクター5でスケールできる事が、Rossat-Mignodら[8]やAeppliら[9]によって指摘されている。

さて、数10mKまで磁気秩序相、超伝導相への相転移を起こさない CeCu_6 は γ 値が15000mJ/molKで、最も重い電子系の一つである[10]。図10はJ. Rossat-Mignodらによる、 CeCu_6 の低温での非弾性中性子散乱スペクトルである[8]。励起エネルギーを0.3meVに固定し、逆格子(0,0,1)点付近で、[1,0,0]方向(上図, $T=0.5\text{K}$)と[0,0,1]方向(下図, $T=0.1\text{K}$)ヘスキャンを行い、スピン相関のQ依存性を測定したものである。図中に一点鎖線(BG)でバックグラウンドを示している。彼らの結果は、(0,0,1)点付近に2種類の散乱、すなわち、q依存性を示さない散乱(点線)、および(0,0,1)にローレンツ型のピークを作る散乱(実線)が存在する事を示している。後者の前者に対する割合は約10%程度である。q依存性を示さない散乱が観測された事は、 CeCu_6 での低温で空間的相関のないシングルサイトのスピン揺動が存在する事を意味している。Rossat-Mignodらがローレンツ型エネルギースペクトルの半値幅から見積もったこのスピン揺動の特性エネルギー、すなわち T_K は0.4meV \sim 5K程度である。一方で、(0,0,1)点にピークが観測された事は、 CeCu_6 の $T=0.5\text{K}$ 付近に、 $k=(0,0,1)$ 型の反強磁性的な短距離スピン間相関が存在する事の最も直接的な証拠である。さらに、Rossat-Mignodらによれば、 $k=(0.85,0,0)$ のincommensurate型のスピン相関が同時に存在している事も報告されるので[8]、この温度領域でスピン相関の競合が起こっている可能性がある。ところで、この様なq-scanでのピークの幅は、スピン相関長の逆数に比例している。たとえば、もし長距離秩序が実現すれば、相関長が無限大になるので、散乱はQ空間でデルタ関数的な鋭いピーク(ブラッグピーク)になる。図10のピーク幅から、a、c軸方向の相関長はそれぞれ $\xi_a = (9 \pm 1)\text{\AA}$ 、 $\xi_c = (3.5 \pm 0.5)\text{\AA}$ と求められた。

この距離は、a軸方向には第二隣接原子程度、c軸方向は最近接程度の距離に相当し、反強磁性的相関が異方的な相関長を持つ事になる。図11に示した相関長の温度変化から、 CeCu_6 では長距離秩序が実現しないにも関わらず、少なくとも5Kからこの反強磁性的短距離相関が存在している事がわ

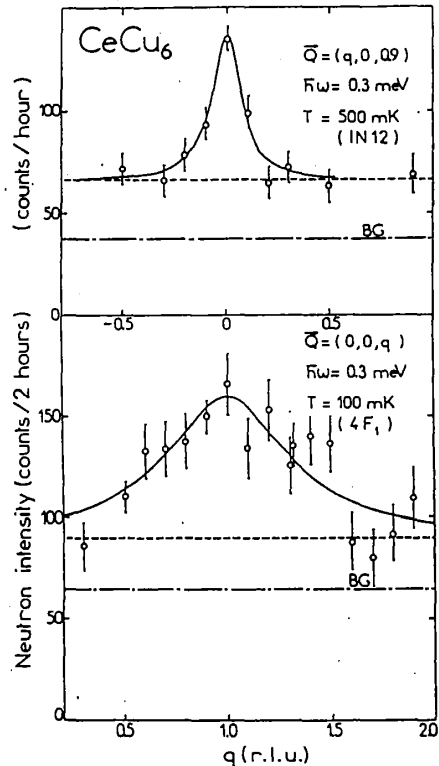
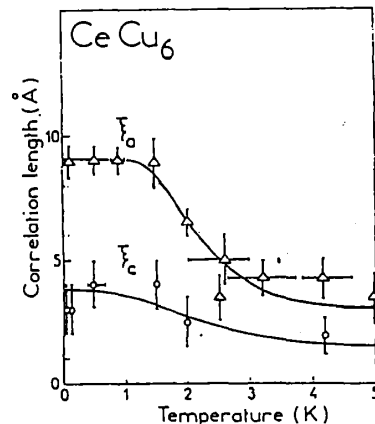
図10 $T=0.5\text{K}$ での0.3meVでのq-scan[8]

図11 相関長の温度変化[8]

かる。さらに温度低下とともにa,c軸方向とも相関長が増大し、3K付近で特に変化が大きくなるが、低温で発散する事なく1.5K以下で一定値になっている。これは、低温で、近藤効果によるシングルサイトスピン揺動のために、散乱長の発散が押さえられてしまったと考えられる。一方、図12は、G. Aeppliらによって初めて測定された、CeCu₆単結晶の(1.8,0,0)と(1.25,0,0)でのT=0.4Kでのエネルギースペクトルで、黒丸が無磁場下、白丸がc軸方向に6.4Tの磁場をかけた場合のスペクトルである[9]。G. Aeppliらはこのスペクトルを十分エネルギーの大きい領域でのsingle-pole近似を用いた散乱断面積、

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} \propto \chi_0 \omega \frac{\Gamma}{\omega^2 + \Gamma^2} \quad (k_B T \ll \hbar\omega) \quad (8)$$

によって解析を行った。図12中の実線が上式によるフィッティングの結果で、非常に良い一致が得られている。図13に、この解析から得られた χ_0 と Γ の温度、磁場依存性を示したが、これから両者の積 $\chi_0\Gamma$ は磁場とQに対し非常に小さい依存性しか示さない事が示された。これは、 $k_B T \ll \hbar\omega$ の領域で動的帯磁率の磁場およびQ依存性が非常に小さい事を意味する。CeCu₆での4f電子がフェルミ液体的に振る舞う場合、動的帯磁率の特徴的なQ依存性が予想されるから、この実験結果は、CeCu₆での動的帯磁率がフェルミ液体論では説明できない事を意味していると思われる。

以上に述べたCeCu₆での動的帯磁率のふるまいと類似した測定結果が、CeRu₂Si₂においても得られている[8][11]。CeRu₂Si₂も低温まで磁気秩序化しないが、80kOe付近にメタ転移的な磁化過程の異常が観測されている[12]。 γ 値は350mJ/K²molでCeCu₆の γ の約1/4である。図14はCeRu₂Si₂でのエネルギー1.6meVでのq-scanで、c*内の(1,1,0)方向と(0,1,0)方向にスキャンしている[8]。CeCu₆と同様にシングルサイトスピン揺動による散乱と、スピン間相関によるピークの2種類が観測されている。また、ピーク位置から、2種類のスピン間相関 $k_1=(0.3,0,0)$ と $k_2=(0.3,0.3,0)$ が混在している事がわかる。しかしスピン間相関のシングルサイトスピン揺動に対する比は40%で、CeCu₆に比べ4倍程度大きい。すなわち、CeRu₂Si₂ではスピン間相関がCeCu₆より重要な役割を果たす事を意味する。また、シングルサイトスピン揺動の特性エネルギー T_K は約2meV~23Kで、CeCu₆の約5倍である。 T_K と γ 値を比較すると、積 $T_K\gamma$ は、CeCu₆、CeRu₂Si₂ではほぼ一致する事から、両者のフェルミレベルの共鳴ピークは、主にシングルサイトスピン揺動によるものと考えられる。全体、CeCu₆とCeRu₂Si₂での特徴的なエネルギースケールが4~5のファクターでスケールできるという特徴が見られる。

図15は、CeRu₂Si₂の1.5Kでのサイト間相関 k_2 での位置(0.7,0.7,0)で磁場を[001]方向にかけた

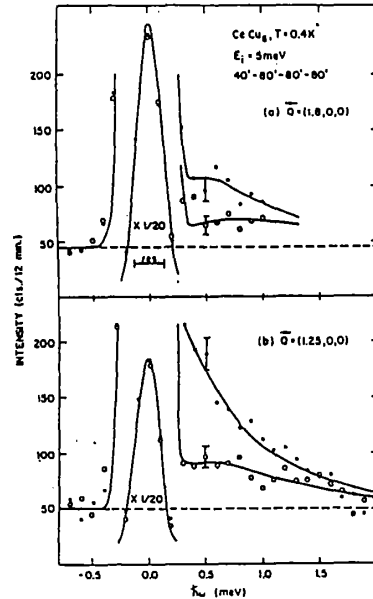


図12 エネルギースペクトルの磁場依存性[9]

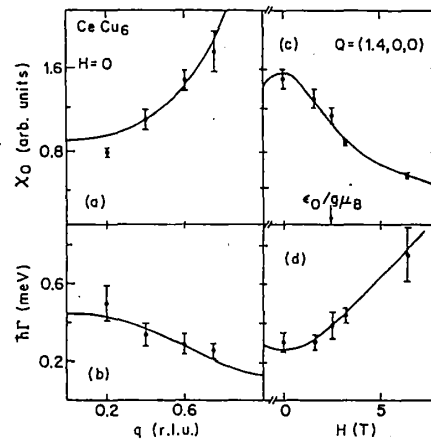


図13 χ , Γ の磁場及びQ依存性[9]

場合の散乱強度の磁場依存性である。シングルサイト、及びバックグラウンドの寄与を波線、鎖線で示している。磁場をかけるとサイト間相関による散乱 (correlations) が抑えられていき、メタ転移が観測される80kOe付近で特に顕著な変化を示す[12]。一方、シングルサイトの寄与 (localized) は磁場に依存性しない。従って、強磁場磁化過程に見られるメタ転移的な異常は、中性子で観測されたincommensurateなスピン相関が磁場によって壊れてしまう事によるといえる。CeCu₂Si₂でも、類似した散乱強度の磁場依存性が観測されていて、20kOeで特に磁場依存性が大きい。実は、この値は、磁気抵抗、de Haas-van Alphen効果等に異常が見られる磁場に近い。しかし、先に述べたように、CeCu₂Si₂でのスピン間相関の寄与はCeRu₂Si₂に比べ小さいので、メタ転移のふるまいが顕著には現れないと思われる。

このように、CeCu₂Si₂での興味深い4f電子のふるまいが中性子散乱によって観測されているものの、その後の中性子実験の報告例は、決して多くはない。しかし、最近、日本でも、中性子実験用希釈冷凍機が安定して稼働し始めており、ごく近い将来に新たな知見が得られる事が期待できる。

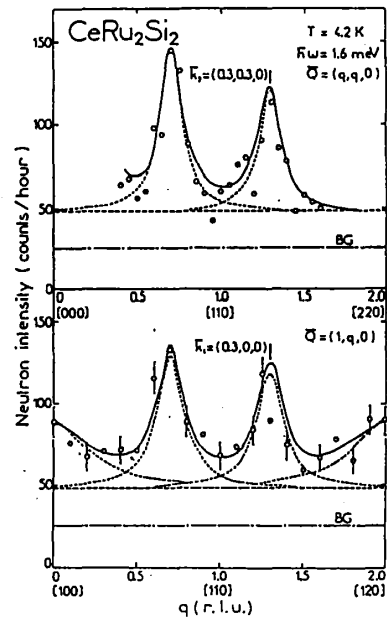


図 1 4 T=4.2Kでの1.6meVのq-scan[8]

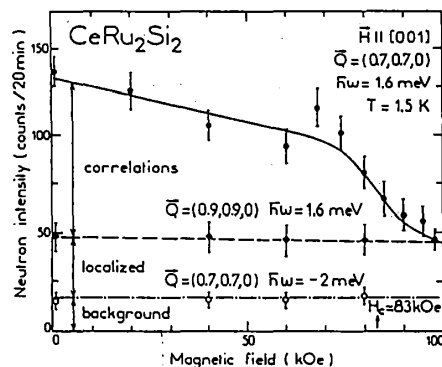


図 1 5 散乱強度の磁場依存性[8]

参考文献

- [1] 星埜禎男編., 中性子回折. 実験物理学講座 1976).
- [2] C. Geibel, C. Schank, S. Thies, H. Kitazawa, C.D. Bredl, A. Bohm, M. Rau, A. Grauel, R. Caspar, R. Helfrich, U. Ahlhem, G. Weber, F. Steglich, Z. Phys. B 84 (1991)1.
- [3] A. Krimmel, P. Fisher, B. Roessli, H. Maletta, C. Geibel, C. Schank, A. Grauel, A. Loidl, F. Steglich, Z. Phys. B86 (1992)161.
- [4] H. Kita, A. Donni, Y. Endoh, K. Kakurai, N. Sato, T. Komatsubara, J. Phys. Soc. Jpn 63 (1994)726.
- [5] T. Takabatake, F. Teshima, H. Fujii, S. Nishigori, T. Suzuki, T. Fujita, Y. Yamaguchi, J. Sakurai, D. Jaccard, Phys. Rev. B41 (1990)9607.
- [6] M. Kohgi, K. Ohoyama, T. Osakabe, M. Kasaya, T. Takabatake, H. Fujii, Physica B186-188 (1993)409.
- [7] M. Kasaya, T. Tani, H. Suzuki, K. Ohoyama, M. Kohgi, J. Phys. Soc. Jpn 60 (1991)2542.
- [8] J. Rossat-Mignod, L.P. Pagnault, J.L. Jacoud, C. Vettier, P. Lejay, J. Flouquet, E. Walker, D. Jaccard, A. Amoto, J. Magn. Magn. Mat. 76&77 (1988)376.
- [9] G. Aeppli, H. Yashizawa, Y. Endoh, E. Bucher, J. Hufnagel, Y. Onuki, T. Komatsubara, Phys. Rev. Lett. 57(1986)122.
- [10] Y. Onuki, Y. Shimizu, T. Komatsubara, J. Phys. Soc. Jpn 53(1984)1210.
- [11] L.P. Regnault, W.A.C. Erkelens, J. Rossat-Mignod, P. Leray, J. Flouquet, Phys. Rev. B38 (1988)4481.
- [12] P. Haen, J. Flouquet, F. Lapierre, P. Lejay, G. Remenyi, J. Low Temp. Phys. 67(1987)391.